

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **07301828 A**(43) Date of publication of application: **14.11.95**

(51) Int. Cl.

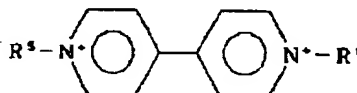
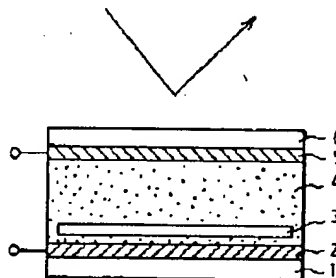
**G02F 1/15
C09K 9/00**(21) Application number: **06095228**(22) Date of filing: **09.05.94**(71) Applicant: **TONEN CORP**(72) Inventor: **OTO NATSUKO
IZUMI YUZO
KOSEKI KEIICHI**(54) **ELECTROLYTE SOLUTION FOR
ELECTROCHROMIC ELEMENT**

COPYRIGHT: (C)1995,JPO

(57) Abstract:

PURPOSE: To use excellent electrochromic(EC) coloring characteristics of a viologen deriv. and to obtain an electrolyte soln. for an EC element having low voltage driving property and low haze by dissolving a specified viologen deriv. in a solvent containing a specified alcohol.

CONSTITUTION: N,N'-substd.4,4'-bipyridyl (viologen deriv.) expressed by formula II is dissolved in a solvent containing at least one kind of alcohol expressed by $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{R}^3$, wherein R is a lower alkyl group and n is an integer 1 to 3. In formula, R^5 and R^6 are independently selected from groups containing aliphatic hydrocarbon or aromatic hydrocarbon. As for the EC display element, for example, it has a laminated structure comprising, from the bottom, glass layer 1, counter electrode 2, back plate 3, solid electrolyte film 4, transparent conductive film 5 and glass plate 6. The solid electrolyte film 4 is produced by impregnating pores of a polymer porous film with the electrolyte soln. above described.



(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平7-301828

(43)公開日 平成7年(1995)11月14日

(51)Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
G 0 2 F 1/15	5 0 8			
C 0 9 K 9/00		A		

審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 6 頁)

(21)出願番号 特願平6-95226

(22)出願日 平成6年(1994)5月9日

(71)出願人 390022998

東燃株式会社

東京都千代田区一ツ橋1丁目1番1号

(72)発明者 大戸 奈津子

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡1丁目3番1

号 東燃株式会社総合研究所内

(72)発明者 出水 祐三

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡1丁目3番1

号 東燃株式会社総合研究所内

(72)発明者 古関 恵一

埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡1丁目3番1

号 東燃株式会社総合研究所内

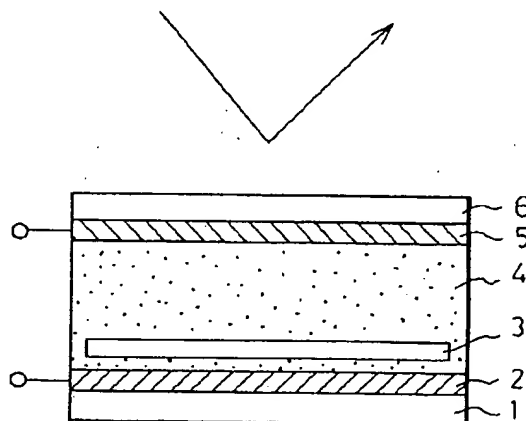
(74)復代理人 弁理士 石田 敬 (外4名)

(54)【発明の名称】 エレクトロクロミック素子用電解質溶液

(57)【要約】

【目的】 固体でありながらイオン導電性を高くし、かつ駆動電圧を低く、またヘイズ率を低くしたエレクトロクロミック素子の提供。

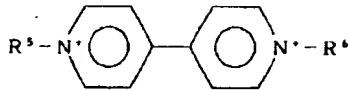
【構成】 一般式 $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{R}'$ 〔式中、 R' は低級アルキル基、 n は1、2又は3である。〕で表わされる少なくとも1種のアルコールを含む溶媒中に、ヒオロゲン誘導体を溶解させた溶液、又はこの溶液を多孔質薄膜に含浸固定してなる電解質薄膜からなるエレクトロクロミック素子用電解質。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式

【化1】



(式中、 R^5 、 R^6 はそれぞれ独立して脂肪族系炭化水素含有基、芳香族系炭化水素含有基から選ばれる。) で表わされるN、 N' -置換4、4'-ビビリジル(ビオロゲン誘導体)を一般式 $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{R}^1$ (式中、 R^1 は低級アルキル基、 n は1~3の整数である) で表わされる少なくとも1種のアルコールを含む溶媒中に溶解させたことを特徴とするエレクトロクロミック素子用電解質溶液。

【請求項2】 請求項1記載のN、 N' -置換4、4'-ビビリジルを、請求項1記載の少なくとも1種のアルコールと当該アルコールよりも屈折率の高い溶媒との混合溶媒に溶解させた電解質溶液を多孔質薄膜に含浸固定化してなることを特徴とするエレクトロクロミック素子用電解質薄膜。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明はエレクトロクロミック素子用電解質に係わる。

【0002】

【従来の技術】 電圧によって物質の色が可逆的に変化するエレクトロクロミック(EC)現象を応用した素子に関心が高まっている。エレクトロクロミック素子(ECD)は明るく見やすい、大面積表示が可能である、メモリー性がある(消費電力が小さい)などの特徴を有し、このような特徴を活かした応用として、株価表示、メッセージボード、案内板などの大型表示板、また自動車の防眩ミラー、調光ガラス(窓)、サングラスなどの調光素子がある。

【0003】 典型的なECDの構造は、エレクトロクロミック電極(WO_3)と対極の間に電解質を配置して成り、両電極間に電圧を印加すると WO_3 が電解質からのイオンと電源からの電子でカソード還元されて着色するものである。

【0004】 上記液体電解質としてビオロゲンの水溶液系が研究されているが、さらにポリエチレンオキシドの高分子固体電解質にビオロゲン誘導体を溶解し、これを作用電極と対極の間に挟んだものもECDとして利用できることが開示されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 上記の如く、電解質としてビオロゲンの水溶液系を用いる場合には、水溶液系のため2~3Vの印加電圧は適当ではなく(水の電解が発生する)、一方、ポリエチレンオキシド高分子固体電解質にビオロゲン誘導体を溶解して成るECDは、高分

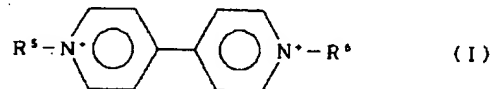
子固体ポリエチレンオキシドを用いているために膜強度が低く、大面積化が困難であるほか、動作電圧が10V以上と高く、また熱あるいは光重合などで製作しているためデバイスを組んだ後で若干反応が進行して劣化の原因になり易いなどの問題があった。

【0006】

【課題を解決するための手段】 本発明は、上記目的を達成するために、(1) 下記一般式(I)

【0007】

【化2】



【0008】 (式中、 R^5 、 R^6 はそれぞれ独立して脂肪族系炭化水素含有基、芳香族系炭化水素含有基から選ばれる。) で表わされるN、 N' -置換4、4'-ビビリジル(ビオロゲン誘導体)を、一般式 $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{R}^1$ (式中、 R^1 は低級アルキル基であり、 n は1~3の整数である。) で表わされる少なくとも1種のアルコールを含む溶媒中に溶解させたことを特徴とするエレクトロクロミック素子用電解質溶液、及び

(2) 前記(1)項記載のN、 N' -置換4、4'-ビビリジルを、前記(1)項記載のアルコール及び、当該アルコールよりも屈折率の高い溶媒に溶解させた電解質溶液を多孔質薄膜に含浸固定化してなることを特徴とするエレクトロクロミック素子用電解質薄膜を提供する。

【0009】 本発明の好ましい実施態様を列挙すると下記の通りである。

(3) 溶媒アルコールの R^1 が水素又は C_1 ~ C_4 の直鎖アルキル基である、(1)項又は(2)項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

(4) 溶媒アルコールが2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノールである(R^1 がメチル又はエチルであり、 $n=1$ である)(1)項又は(2)項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

【0010】 (5) 式(I)中 R^5 、 R^6 が $\text{R}^5=\text{R}^6$ である、(1)項ないし(4)項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

(6) 式(I)中 R^5 、 R^6 が $\text{R}^5=\text{R}^6$ であり、炭素原子数1~8の直鎖状又は分岐状のアルキル基である、(1)項ないし(4)項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

(7) 式(I)中、 R^5 、 R^6 がヘプチル基である、(1)項ないし(4)項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

【0011】 (8) 式(I)中 R^5 、 R^6 が $\text{R}^5=\text{R}^6$ であり、フェニル基、ベンジル基、又はこれらの基の任意の位置がハロゲン原子、シアノ基、もしくは炭素原子数1~4のアルキル基で置換されている基である、(1)項ないし(4)項記載のエレクトロクロミック素

子用電解質。

子用電解質。

(9) 式(1)中 R^1 、 R^2 が $R^1 = R^2$ であり、フェニル基、ベンジル基、4-シアノフェニル基である。

(1) 項ないし(4) 項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

【0012】(10) 式(1)のビオロゲン誘導体の添加量が1~35重量%である、(1) 項ないし(9) 項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

(11) 式(1)のビオロゲン誘導体の添加量が4~30重量%である、(1) 項ないし(9) 項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

(12) 求電子試薬を含むことを特徴とした、前記

(1) 項ないし(11) 項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

(13) 前記求電子試薬がルイス酸である、(12) 項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

(14) 前記求電子試薬が、プロトン放出性のフレンスネッド酸である、(12) 項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

(15) 求電子試薬が硝酸、塩酸、硫酸から選ばれた

(12) 項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

(16) 求電子試薬が、硝酸であることを特徴とする

(12) 項記載のエレクトロクロミック素子用電解質。

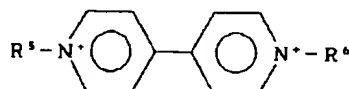
このような電解質溶液を用いてエレクトロクロミック素子を構成した場合、ビオロゲン誘導体の優れた着色特性を保有したまま、2.5V程度の低電圧での駆動が可能になり、かつサイクル特性にも優れ、また広い透過率変化(7~80%)も可能になる。このような効果は、電解質溶液をそのまま溶液として用いる場合にも発揮できるが、安定な固体多孔質薄膜中に含浸固定する場合に

*は、溶液系でありながら固体として取扱うことが可能であり、従ってハンドリングが容易であり、壊れても溶液が飛び散るなどの問題を抑制でき、また、大面積では均一なギャップが得られ、液だれによるシール破損が抑制できる。

【0013】ビオロゲン誘導体は4, 4'-ビピリジンの誘導体で、酸化型は無色、還元型は青色~紫色を示す酸化還元型化合物であり、下記一般式で表わされる。

【0014】

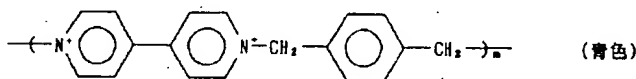
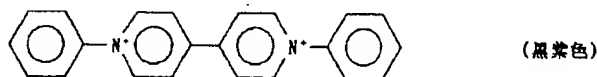
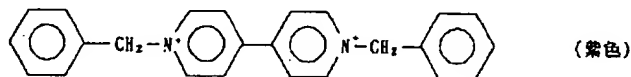
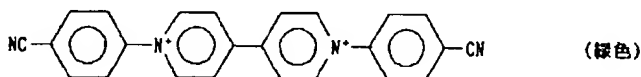
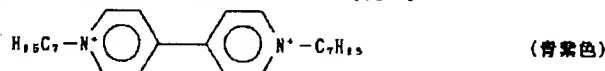
【化3】



【0015】上記式中、 R^1 、 R^2 はそれぞれ独立して脂肪族系炭化水素含有基又は芳香族系炭化水素含有基から選ばれる基から選択されるが、 R^1 と R^2 は同一であることが好ましい。脂肪族系炭化水素含有基として好ましくは直鎖状又は分岐状のアルキル基、より好ましくは炭素原子数1~8の直鎖状又は分岐状のアルキル基、特にn-ヘプチル基である。あるいは、芳香族系炭化水素含有基として、フェニル基、ベンジル基、又はこれらの基の任意の位置がハロゲン原子、シアノ基もしくは炭素原子数1~4のアルキル基で置換されている基、より好ましくはフェニル基、ベンジル基、4-シアノフェニル基である。より具体的には、4, 4'-ビピリジンをメチル化、ベンジル化した誘導体、下記化合物が例示される。このビオロゲン誘導体は、誘導体の種類を選択することにより多色を実現できる利点がある。

【0016】

【化4】



【0017】このようなビオロゲン誘導体は、一般式 $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{R}^1$ 〔式中、 R^1 は低級アルキル基、 n は1~3の整数である〕で表わされる少なくとも1種のアルコールからなる溶媒に溶解する。

【0018】好ましい溶媒は、上記式中、 R^1 が水素又は直鎖状低級アルコール（特に炭素原子数1~4）のアルコール、さらに好ましくは R^1 がメチル又はエチルでありかつ $n=1$ である2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノールである。

【0019】上記溶媒中へのビオロゲン誘導体の添加量は1~35重量%、より好ましくは5~30重量%である。1重量%より少ないと、着消色動作を行なう時の着色側の透過率が十分に下らない欠点があり、35重量%よりも多い場合は溶媒に解けにくく、しかも色残りし易い欠点がある。5~30重量%の場合は着消色動作を行なう時の透過率が10%以下となり、ビオロゲン誘導体の溶解性も良好なため、最も好ましい。

【0020】本発明では、 N 、 N' -置換4,4'-ビピリジルを、一般式 $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{R}^1$ 〔式中 R^1 は低級アルキル基であり、 n は1~3の整数である。〕で表される少なくとも一種のアルコールと、当該アルコールよりも屈折率の高い溶媒に溶解させることにより、特開平3-67227号公報と同様に、固体高分子多孔性薄膜の空洞中に充填して電解質薄膜を構成することができる。この混合溶媒は、屈折率が、1.45から1.53の間にあり、高分子多孔性薄膜の一般的な屈折率である1.49~1.53に近いので含浸固定化後の薄膜のヘイズ率を低下させる効果がある。一般式 $\text{HO}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{R}^1$ 〔式中 R^1 は低級アルキル基であり、 n は1~3の整数である。〕で表されるアルコールと混合させる溶媒としては、当該アルコールよりも屈折率が高ければ、特に種類は問わないが、芳香族ニトリル、たとえば、ジフェニルプロピオニトリルなどがあげられる。この電解質薄膜は、固体高分子多孔性薄膜の強度を保有し、薄膜化、大面積化が可能である。本発明の固体高分子多孔性薄膜としては、膜厚が0.1 μm ~50 μm 、空孔率が40%~90%、破断強度が200 kg/cm^2 以上、平均貫通孔径が0.01 μm ~0.7 μm のものが好ましく使用される。

【0021】薄膜の厚さは一般に0.1 μm ~50 μm であり、好ましくは1.0 μm ~25 μm である。厚さが0.1 μm 未満では支持膜としての機械的強度の低下および取り扱い性の面から実用に供することが難しい。一方、50 μm を超える場合に実効抵抗を低く抑えるという観点から好ましくない。多孔性薄膜の空孔率は、40%~90%とするのがよく、好ましくは60%~90%の範囲である。空孔率が40%未満では電解質としてのイオン導電性が不十分となり、一方90%を超えると支持膜としての機械的強度が小さくなり実用に供することが難しい。

【0022】平均貫通孔径は、空洞中にイオン導電体を固定化できればよいが、一般に0.01 μm ~0.7 μm である。好ましい平均貫通孔径は高分子膜の材質や孔の形状にもよる。高分子膜の破断強度は一般に200 kg/cm^2 以上、より好ましくは500 kg/cm^2 以上を有することにより支持膜としての実用化に好適である。本発明に用いる多孔性薄膜は上記のようなイオン導電体の支持体としての機能を持ち、機械的強度のすぐれた高分子材料からなる。

【0023】化学的安定性の観点から、例えばポリオレフィン、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデンを用いることができるが、本発明の多孔構造の設計や薄膜化と機械的強度の両立の容易さの観点から好適な高分子材料の1例は、特に重量平均分子量が 5×10^5 以上のポリオレフィンである。すなわち、オレフィンの単独重合体または共重合体の、結晶性の線状ポリオレフィンで、その重量平均分子量が 5×10^5 以上、好ましくは $1 \times 10^6 \sim 1 \times 10^7$ のものである。例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体、ポリブデン-1、ポリ4-メチルペンテン-1などがあげられる。これらのうちでは重量平均分子量が 5×10^5 以上のポリエチレンまたはポリプロピレンが好ましい。ポリオレフィンの重量平均分子量は、得られる透過膜の機械的強度に影響する。超高分子量ポリオレフィンは、超延伸により極薄で高強度の製膜を可能とし、実効抵抗の低い高イオン導電性薄膜の支持体とする。重量平均分子量が 5×10^5 未満のポリオレフィンを同時に用いることができるが、重量平均分子量が 5×10^5 以上のポリオレフィンを含まない系では、超延伸による極薄高強度の膜が得られない。

【0024】上記のような多孔性薄膜は次のような方法で製造できる。超高分子量ポリオレフィンを流動パラフィンのような溶媒中に1重量%~15重量%を加熱溶解して均一な溶液とする。この溶液からシートを形成し、急冷してゲル状シートとする。このゲル状シート中に含まれる溶媒量を、塩化メチレンのような揮発性溶剤で抽出処理して10重量%~90重量%とする。このゲル状シートをポリオレフィンの融点以下の温度で加熱し、面倍率で10倍以上に延伸する。この延伸膜中に含まれる溶媒を、塩化メチレンのような揮発性溶剤で抽出除去した後に乾燥する。

【0025】別の好適な高分子材料の例はポリカーボネートで、この場合の固体高分子多孔性薄膜はポリカーボネート薄膜に対し原子炉中で荷電粒子を照射し、荷電粒子が通過した飛跡をアルカリエッチングして孔を形成する方法で作製することもできる。このような薄膜は例えばニュークリポア・メンブレンとしてポリカーボネート及びポリエステル製品が上市されている。

【0026】そのほか、ポリエステル、ポリメタアクリレート、ポリアセタール、ポリ塩化ビニリデン、テトラ

フルオロポリエチレン等を用いることができる。高分子薄膜中にイオン導電体を充填する方法としては、①溶媒に溶解させたビオロゲン誘導体、または溶媒中にゾル状またはゲル状に微分散させたビオロゲン誘導体を固体高分子多孔性薄膜に含浸させるか、塗布またはスプレーした後溶剤を除去する、②多孔性薄膜の製造工程でビオロゲン誘導体の溶液または、そのゾルまたはゲル状の分散溶液を混合した後製膜する、③ビオロゲン誘導体の単量体や可溶性プレカーサーを固体高分子多孔性薄膜に含浸させるか、塗布またはスプレーした後、空孔内で反応させる、等の方法を用いることができる。

【0027】上記の如き電解質薄膜を用いてECDを構成するには、電解質薄膜を透明導電電極と対極で挟む。透明導電電極としては SnO_2 、ITOなどがあり、対極は NiO 、 IrO_2 、プルシアンブルーなど酸化発色する電極又は酸化・還元反応で共に無色の物質などが利用可能である。ビオロゲン誘導体がITO電極から電子を受けると還元されて発色する。このとき、あまり高い電圧を印加するとITOが還元されてしまうので3V以下が望ましい。

【0028】図面を用いてエレクトロクロミック素子の作製例を説明する。図1にEC表示素子の例を示す。この積層構造において、下からガラス板1、対極2、背景板3、固体電解質膜4、透明導電膜5及びガラス板6である。この表示素子は反射モードであるので、ガラス板1は必ずしも透明板である必要はなく、また樹脂板などでもよい。対極2には水素や酸素の発生が少なく、電気化学的酸化還元反応に対して可逆性のよい、電気容量の大きい電子導電性材料が用いられる。具体的にはカーボンや、遷移金属とカーボンの複合材などがある。対極2の厚さは0.1~10 μm 程度である。

【0029】背景板3は白色背景板が一般的で、例えばアルミナ粉末をバインダーと共に混練し、成形したシートを用いることができる。背景板3は対極2が兼ねることも可能である。固体電解質膜4は例えば、高分子多孔膜の空孔中に、前記の特定溶媒とビオロゲン化合物を溶解した電解質溶液を含浸したものであり、厚みが4~20 μm 、 $1.5 \sim 2.5 \times 10^{-4} \text{ S/cm}$ のイオン導電率を有する固体電解質膜である。

【0030】透明導電膜5は集電極であり、酸化インジウム・スズ(ITO)酸化スズなどで、厚さは0.1~0.2 μm で、ガラス板6上に形成される。透明導電膜5と対極2の間に印加する電圧は2.5V程度でよい。このときあまり高い電圧を印加するとITOが還元され*

＊てしまうので好ましくない。こうして作成されるEC素子は電解質が高分子膜中に固定化されているため、実質的に固体膜として取扱えるため、構造が簡単で、しかも組立て時の取扱いも容易であり、かつ組立後も破損しても液漏れの心配がないので、液体電解質の場合のように特別の注意は不要である。

【0031】図2の構造が図1と異なる点是对極13として上述のごとく IrO_2 などを用い、0.05~0.2 μm の厚みで形成され光透過性である点である。

【0032】図1の構造では背景板3は光不透過性であり、対極2は光不透過性でも、透過性であってもよい。図2の構造では導電膜12、15間に導電膜15を負電圧として電圧を印加することにより、調光ガラス(ECウィンドー)として作用する。なお、この構造で対極13をパターン化すれば透過型の表示素子としても使用できる。

【0033】

【実施例】

(1) 溶液の製作

20 2-メトキシエタノール10gを取り、ヘプチルビオロゲン10wt%、特級硝酸0.1wt%を添加した。スターラーを用いてビーカー中で良く攪拌混合させた。

【0034】(2) 素子製作(防眩ミラー)

① 2枚のガラス基板(A、B)40mm角の間にスペーサを介し(間隔20 μm)、周囲のシールを紫外線接着剤を用いてシールした。このとき一箇所、溶液の注入口を開けておいた。但しガラス基板Aは、ITO/ガラス基板でありガラス基板BはITO/ガラス基板の裏面に銀鏡を付けた。

30 ② 電解質溶液を注入した。真空チャンバーで全体を真空500Pa以下程度に引いておき溶液を浸して室温(22℃)で注入した。

③ 注入後、注入口を再度紫外線硬化接着剤でシールした。

【0035】(3) 素子駆動評価

初期電流電圧特性評価を行った。(2極式)

駆動電圧は2.5Vであり、色残りについて目視で確認した。結果を表に示す(実施例:表1、比較例:表2)。本実施例ではサイクル特性向上のため硝酸を添加している。この表から、ヘプチルビオロゲン及び2-メトキシエタノールまたは2-エトキシエタノールよりなる溶液を使用した素子は、良いエレクトロクロミック特性を示すことが判る。

【0036】

表1. EC素子のサイクル特性(実施例)

実施例	溶媒	色残りしないで動作 できるサイクル数(回)	硝酸濃度 (wt%)
1	2-メトキシエタノール	2000~3000	0.1

9			10
2	2-エトキシエタノール	700~800	1.0

【0037】

表2. EC素子のサイクル特性(比較例)

比較例	溶媒	色残りしないで動作 できるサイクル数(回)	硝酸濃度 (wt%)
1	プロピレングリコール	0	1.0
2	1,3-ブタンジオール	0	1.0
3	エチルフェニルハイドライト	0	1.0
4	ベンジルアルコール	0	1.0
5	2-フェニルエタノール	200~300	1.0

【0038】(4)エレクトロクロミック素子の反射率測定

ヘプチルピオロゲン10wt%、硝酸0.1wt%及び2-メトキシエタノールよりなる電解質溶液をEC素子(ガラス/ITO/電解質溶液層/ITO/ガラス/Ag鏡)に注入し、この素子の反射率を測定した。駆動電圧と反射率の関係を表に示す。

【0039】

表3. 駆動電圧と反射率の関係

駆動電圧(V)	反射率(%)
0	82.3
2.00	35.6
2.25	28.2
2.50	23.4
3.00	15.4

【0040】

【発明の効果】本発明によれば、ピオロゲン誘導体の優れたエレクトロクロミック着色特性を生かし、かつ低電*

*圧駆動、低ヘイズ率のEC素子用電解質溶液が提供される。また、固体多孔質薄膜にこの電解液を含浸固定することにより液体電解質としてのイオン導電率を失なうことなく、固体として取扱うことが可能である。

【図面の簡単な説明】

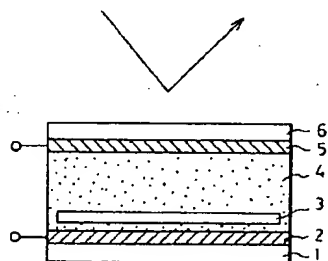
【図1】実施例のEC表示素子を示す断面図である。

【図2】実施例の透過型調光素子を示す断面図である。

【符号の説明】

- 1…ガラス板
- 2…対極
- 3…背景板
- 4…固体電解質膜
- 5…透明導電膜
- 6…ガラス板
- 11…ガラス板
- 12…透明導電膜
- 13…対極
- 14…固体電解質膜
- 15…透明導電膜
- 16…ガラス板

【図1】



【図2】

